

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2003-003258

(43)Date of publication of application : 08.01.2003

(51)Int.Cl. C23C 14/34
C22C 1/02
C22C 21/06

(21)Application number : 2001-359185

(71)Applicant : MITSUI MINING & SMELTING CO LTD

(22)Date of filing : 26.11.2001

(72)Inventor : KUBOTA TAKASHI
WATANABE HIROSHI
MATSUMAE KAZUO
KATO KAZUTERU

(30)Priority

Priority number : 2001122169 Priority date : 20.04.2001 Priority country : JP

(54) METHOD FOR MANUFACTURING ALUMINUM-ALLOY TARGET MATERIAL, AND ALUMINUM-ALLOY TARGET MATERIAL OBTAINED BY THE METHOD

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a manufacturing technology by which an aluminum-alloy target material where aluminum-carbon phases in an aluminum matrix are finely precipitated without causing much segregation can be obtained easily.

SOLUTION: In the method for manufacturing the aluminum-alloy target material in which carbon is incorporated in aluminum: an aluminum-carbon alloy where aluminum-carbon phases are dispersed finely and uniformly in an aluminum matrix is produced by putting aluminum into a carbon crucible, applying heating to 1,600-2,500° C, melting the aluminum to form aluminum - carbon alloy in the carbon crucible, and cooling and solidifying the aluminum - carbon alloy in a molten state; or the resultant solidified aluminum - carbon alloy is remelted and an additive element such as magnesium is added to the remelted alloy, followed by casting after agitation.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 08.12.2003

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2003-3258

(P2003-3258A)

(43) 公開日 平成15年1月8日 (2003.1.8)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テマコード [*] (参考)
C 2 3 C 14/34		C 2 3 C 14/34	A 4 K 0 2 9
C 2 2 C 1/02	5 0 3	C 2 2 C 1/02	5 0 3 J
21/06		21/06	

審査請求 未請求 請求項の数 7 O L (全 9 頁)

(21) 出願番号 特願2001-359185 (P2001-359185)

(22) 出願日 平成13年11月26日 (2001.11.26)

(31) 優先権主張番号 特願2001-122169 (P2001-122169)

(32) 優先日 平成13年4月20日 (2001.4.20)

(33) 優先権主張国 日本 (J P)

(71) 出願人 000006183
三井金属鉱業株式会社
東京都品川区大崎1丁目11番1号

(72) 発明者 久保田 高史
埼玉県上尾市原市1333-2 三井金属鉱業
株式会社総合研究所内

(72) 発明者 渡辺 弘
埼玉県上尾市原市1333-2 三井金属鉱業
株式会社総合研究所内

(74) 代理人 100111774
弁理士 田中 大輔

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 アルミニウム系合金ターゲット材の製造方法及びその方法により得られたアルミニウム系合金ターゲット材

(57) 【要約】

【課題】 アルミニウム母相中のアルミニウム-炭素相が大きな偏析をすることなく微細に析出したアルミニウム合金ターゲット材を容易に得ることができる製造技術を提供する。

【解決手段】 アルミニウムに炭素を含有したアルミニウム系合金ターゲット材の製造方法において、炭素ルツボにアルミニウムを投入して1600～2500℃に加熱し、アルミニウムを溶解して炭素ルツボ内にアルミニウム-炭素合金を生成し、該溶湯を冷却凝固することにより、アルミニウム母相中にアルミニウム-炭素相を均一に微細分散させたアルミニウム-炭素合金を形成する。或いは、このアルミニウム-炭素合金を再溶解し、マグネシウム等の添加元素を加え、攪拌後 casting するものとした。

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 アルミニウムに炭素を含有したアルミニウム系合金ターゲット材の製造方法において、炭素ルツボにアルミニウムを投入して 1600～2500℃に加熱し、アルミニウムを溶解して炭素ルツボ内にアルミニウム-炭素合金を生成し、該溶湯を冷却凝固することにより、アルミニウム母相中にアルミニウム-炭素相を均一に微細分散させたアルミニウム-炭素合金を形成することを特徴とするアルミニウム系合金ターゲット材の製造方法。

【請求項 2】 アルミニウムに炭素を含有したアルミニウム系合金ターゲット材の製造方法において、炭素ルツボにアルミニウムを投入して 1600～2500℃に加熱し、アルミニウムを溶解して炭素ルツボ内にアルミニウム-炭素合金を生成し、該溶湯を冷却凝固することによりアルミニウム-炭素合金を形成し、該アルミニウム-炭素合金を再溶解ルツボに投入して、加熱することにより再溶解し、該再溶解溶湯に添加元素を加えて攪拌した後、該再溶解溶湯を鋳型に投入して鋳造することを特徴とするアルミニウム系合金ターゲット材の製造方法。

【請求項 3】 冷却凝固して得られたアルミニウム-炭素合金を冷間加工した後に再溶解するものである請求項 2 に記載のアルミニウム系合金ターゲット材の製造方法。

【請求項 4】 再溶解溶湯に添加元素を加える際にアルミニウムを添加するものである請求項 2 または請求項 3 に記載のアルミニウム系合金ターゲット材の製造方法。

【請求項 5】 添加元素はマグネシウムであり、再溶解時の加熱温度が 660～900℃である請求項 2～請求項 4 いずれかに記載のアルミニウム系合金ターゲット材の製造方法。

【請求項 6】 炭素ルツボ内に生成されるアルミニウム-炭素合金の溶湯を冷却凝固する際の冷却速度は、 $3^{\circ}\text{C}/\text{sec} \sim 2.0 \times 10^5^{\circ}\text{C}/\text{sec}$ である請求項 1～請求項 5 いずれかに記載のアルミニウム系合金ターゲット材の製造方法。

【請求項 7】 請求項 1～請求項 6 のいずれかに記載の製造方法により得られたアルミニウム系合金ターゲット材であって、アルミニウム母相中に分散するアルミニウム-炭素相の大きさが $500\mu\text{m}$ 以下であることを特徴とするアルミニウム系合金ターゲット材。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、アルミニウム合金薄膜を形成する際に用いられるスパッタリング用ターゲット材の製造方法に関するものである。

【0002】

【従来の技術】 従来より、液晶パネルなどの細線配線

は、所定組成のターゲット材を用いてスパッタリング法による薄膜で形成されている。このターゲット材には、形成した薄膜の耐熱性や接合性などの特性要求から高融点金属材料を用いられることが多かった。しかし、近年では、パネルの高精細化、大画面化の進行に伴い、耐熱性ととともに低抵抗特性を満足した材料が使用されている。

【0003】 この耐熱性と低抵抗性との特性を備えた薄膜を形成できる材料としては、アルミニウム系合金が知られており、そのなかでもアルミニウムに炭素を含有したアルミニウム-炭素合金が、薄膜の耐熱性、低抵抗性に特に優れたものとして着目されている。そして、アルミニウム-炭素合金にマグネシウムやマンガンなどの添加元素をさらに加えることで、耐熱性、低抵抗性を更に向上した薄膜を形成できるターゲット材の開発もなされている。

【0004】 このようなアルミニウム系合金ターゲット材の製造方法としては、いわゆる半熔融攪拌法や粉末冶金法が知られている。ところが、これらの製法では、均一な組成のターゲット材を実現することが難しく、ターゲット材中に欠陥を有したり、ターゲット材自体の酸化を生じやすいなどの不具合が多いものである。このことに対して、本発明者等はスパッタリング法によるターゲット材の製造方法を提唱することにより、均一な組成で、ターゲット材中の欠陥や材料自体の酸化を抑制したアルミニウム系合金ターゲット材を得ることを可能とした。

【0005】 この本発明者らの提唱するスパッタリング法によるターゲット材の製造方法は、まず、アルミニウムと炭素とのターゲットをそれぞれ準備し、これらターゲット材を、同時或いは交互にスパッタして基板上に堆積させ、アルミニウム-炭素合金のバルク材を形成するものである。また、このスパッタリングで形成されたアルミニウム-炭素合金のバルク材を再溶解し、添加元素を加え、冷却凝固することにより、優れた特性を有する薄膜の形成可能なアルミニウム系合金ターゲット材を製造するものである。

【0006】 本発明者等の提案するスパッタリング法の製造方法によると、半熔融攪拌法や粉末冶金法に比べ、アルミニウム母相中に炭素が均一に分散した状態のアルミニウム系合金ターゲット材とすることができ、ターゲット材中の欠陥や材料の酸化も抑制されるので、耐熱性、低抵抗性に非常に優れたアルミニウム合金薄膜の形成を安定して行えるものとなる。

【0007】

【発明が解決しようとする課題】 しかしながら、このスパッタリング法によるアルミニウム系合金ターゲット材の製造方法では、最終的に得られるターゲット材中に、比較的大きなアルミニウム-炭素相 (Al_4C_3 相) を形成しやすい傾向があった。このような比較的大きなアルミニウム-炭素相が存在するターゲット材を用いて薄

膜を形成する場合、得られる薄膜に欠陥などを生じるのではないかと、品質上の懸念を生じる。そして、このスパッタリング法の製造方法では、スパッタリング装置等の制約から、一度に製造できるターゲット材の製造量を多くすることに限界がある。さらに、製造時の電力使用量やスパッタリング装置の冷却費用などが製造量に比例して増加するため、製造コストが大きくなるという問題も有していた。

【0008】本発明は、以上のような事情を背景になされたものであり、アルミニウム母相中のアルミニウム-炭素相が大きな偏析をすることなく、微細に且つ均一に分散析出したアルミニウム系合金ターゲット材を容易に得ることができ、製造コストを抑制できる製造技術を提供せんとするものである。

【0009】

【課題を解決するための手段】上記課題を達成するために、本発明は、アルミニウムに炭素を含有したアルミニウム系合金ターゲット材の製造方法において、炭素ルツボにアルミニウムを投入して1600～2500℃に加熱し、アルミニウムを溶解して炭素ルツボ内にアルミニウム-炭素合金を生成し、該溶湯を冷却凝固することにより、アルミニウム母相中にアルミニウム-炭素相を均一に微細分散させたアルミニウム-炭素合金を形成するものとした。

【0010】本発明の製造方法によると、アルミニウム母相中に微細なアルミニウム-炭素相が均一に析出し、偏析も殆ど発生しない。また、炭素ルツボを使用してアルミニウム-炭素合金を生成するため、本発明者等の提唱しているスパッタリング法の製造方法のような装置的な制約も少なく、大型ターゲット材の製造や大量生産が容易に可能となる。そして、本発明は、いわゆる溶解鋳造法を応用しているので、製造コストの抑制して、アルミニウム系合金ターゲット材を製造することができる。

【0011】本発明の製造目的であるアルミニウム系合金ターゲット材は、薄膜特性を考慮し、アルミニウム母相中に炭素を分散させたものである。本発明では、炭素ルツボにアルミニウムを投入して、1600～2500℃に加熱してアルミニウムを溶解するので、アルミニウム-炭素系状態図に従い、炭素ルツボからアルミニウム中に炭素が溶出する。そのため、炭素含有量が0.1～9.2wt%となるアルミニウム-炭素が生成される。この炭素ルツボにおける加熱温度が1600℃未満であると、炭素がアルミニウムへ殆ど固溶なくなり、目的のアルミニウム系合金ターゲット材を製造できなくなる。また、2500℃を超える温度にまで加熱することも可能ではあるが、大気圧雰囲気ではアルミニウムの蒸発が生じ、実用的な製造条件としては適当ではない。

【0012】この炭素ルツボに投入するアルミニウムは、純度99.99(4N)%以上のものを用いることが好ましく、薄膜特性に適した炭素含有量、つまり、

0.1～3.0wt%範囲の炭素を含有したアルミニウム-炭素合金を形成するには、1600～1900℃の加熱温度で溶解することが望ましいものである。

【0013】そして、炭素ルツボ中に生成されたアルミニウム-炭素合金の溶湯を、冷却凝固することで、アルミニウム-炭素合金を形成する。この際の冷却凝固する方法は、溶湯を鋳型に投入して鋳造するという一般的な手法で行ってもよく、また、いわゆるアモルファス金属を形成する際に行われるような急冷凝固法、例えば、単ロール法や双ロール法などのメルトスピン法と呼ばれる手法で行ってもよい。冷却凝固して形成したアルミニウム-炭素合金におけるアルミニウム母相中に分散するアルミニウム-炭素相は、冷却凝固する際の冷却速度が大きい程、微細な状態で均一に分散することになるので、冷却速度を大きくして凝固させることが好ましい。

【0014】このように本発明における炭素ルツボ中の溶湯を冷却凝固する方法は、どのような手法で行ってもよいが、その際の冷却速度は、3℃/sec～2.0×10⁵℃/secの範囲で行うことが望ましい。3℃/sec未満であると、アルミニウム母相中におけるアルミニウム-炭素相が大きな状態で析出し易く、偏析も生じやすい傾向となるからである。また、2.0×10⁵℃/secを超える急冷凝固条件で本発明のアルミニウム系合金ターゲット材を製造することは可能ではあるが、設備コストなどを含む実用的な製造条件としては適当ではなくなる。

【0015】この炭素ルツボ中の溶湯を冷却凝固して形成されるアルミニウム-炭素合金は、鋳型に投入して鋳造する場合であれば、鋳造したアルミニウム-炭素合金をそのままターゲット材として使用できる。また、いわゆるメルトスピン法のような急冷凝固を行ってアルミニウム-炭素合金を形成した場合には線状或いは箔状の合金形状となるが、この場合は、得られた線状或いは箔状のものを再溶解してバルク体に成形し、ターゲット材として用いることができる。

【0016】次に、本発明では、アルミニウムに炭素を含有し、更に、添加元素を加えた3元系のアルミニウム系合金ターゲット材の製造方法として、炭素ルツボにアルミニウムを投入して1600～2500℃に加熱し、アルミニウムを溶解して炭素ルツボ内にアルミニウム-炭素合金を生成し、該溶湯を冷却凝固することによりアルミニウム-炭素合金を形成し、該アルミニウム-炭素合金を再溶解ルツボに投入して、加熱することにより再溶解し、該再溶解溶湯に添加元素を加えて攪拌した後、該再溶解溶湯を鋳型に投入して鋳造するものとした。

【0017】本発明者等の鋭意研究の結果、アルミニウムに炭素を含有し、更に薄膜特性を向上させる添加元素を含む3元系のアルミニウム系合金ターゲット材を製造する場合、炭素ルツボを用いて冷却凝固したアルミニウ

ムー炭素合金を再溶解し、該再溶解溶湯に添加元素を加えて攪拌し、該再溶解溶湯を鑄型に投入して鑄造すると、アルミニウム母相中に、添加元素を均一に分散し、且つ、アルミニウムー炭素相も均一に微細分散した状態のアルミニウム系合金ターゲット材を得ることを見出したのである。

【0018】この再溶解ルツボでの加熱は、添加元素を加えて攪拌できる程度の流動状態になるようにアルミニウムー炭素合金を溶解する必要がある、かつ、アルミニウム母相中へ均一に微細分散したアルミニウムー炭素相が粗大に成長しないようにする必要がある。そのため、再溶解ルツボでの加熱温度は、炭素含有量、添加元素量、溶湯の流動状態制御などを考慮して適宜決定すればよいが、660℃～1000℃の範囲とすることが望ましい。660℃未満であると、溶湯の粘性が高くなるため攪拌が難しくなり、1000℃を超えると、アルミニウムー炭素相の析出が粗大に成長する傾向となるからである。

【0019】また、添加元素を加え攪拌した後、鑄型に投入して鑄造する際の冷却速度については、特に制限はない。本発明者等の研究によると、炭素ルツボで生成したアルミニウムー炭素合金の溶湯を冷却凝固して形成したアルミニウムー炭素合金を、再溶解し、再び鑄造しても、アルミニウム母相中のアルミニウムー炭素相は微細な状態で均一に分散することを確認している。例えば、再溶解後の鑄造における冷却速度を大きくしても、アルミニウム母相中のアルミニウムー炭素相の分散状態は、炭素ルツボで生成したアルミニウムー炭素合金の溶湯を冷却凝固して形成したアルミニウムー炭素合金中の分散状態とほぼ同じようになるのである。つまり、再溶解を行って鑄造した場合であっても、先に炭素ルツボで生成したアルミニウムー炭素合金の溶湯を冷却凝固して形成したアルミニウムー炭素合金中におけるアルミニウムー炭素相の分散状態に依存したアルミニウム系合金ターゲット材が得られるのである。

【0020】本発明における再溶解ルツボはその材質に特に制限はなく、炭素ルツボを使用することも可能である。但し、炭素ルツボを再溶解ルツボとして使用する場合、再溶解時の加熱温度によっては炭素ルツボから炭素の溶出が生じるため、アルミニウムー炭素の状態図を考慮して、加熱温度を適宜決定する必要がある。また、炭素ルツボ以外の再溶解ルツボを使用する場合には、再溶解時の加熱温度により、最終的に得られるアルミニウム系合金ターゲット材としての不純物となるものが溶出しないものであれば、その材質に制約はない。また、添加元素としては、薄膜特性の耐熱性向上に寄与するマンガ

ン、マグネシウム等が挙げられる。

【0021】そして、上記のように再溶解を行ってアルミニウム系合金ターゲット材を製造する方法において

10

20

30

40

50

ットを冷間加工することが好ましい。冷却凝固して得られたアルミニウムー炭素合金をそのまま再溶解し、添加元素を加えて攪拌して鑄造した場合、最終的なターゲット用の板材として圧延などの成形加工する際に、材料自体に耳割れ、わに口割れなどが発生し易く、加工歩留まりが低くなる傾向がある。本発明者らは、この最終的な成形加工時に発生する割れの原因を調査したところ、アルミニウム母相中に分散したアルミニウムー炭素相にあることを突き止めた。後述するように、本発明に係るアルミニウム系合金ターゲット材の製造方法によれば、アルミニウムー炭素相は、アルミニウム母相中に針状に析出して分散する傾向がある。そして、成形加工時に発生する割れは、この針状析出相の長手軸方向に沿って生じているものが殆どであることが確認された。つまり、炭化物であるアルミニウムー炭素相は、母相のアルミニウムに比べて極めて脆いため、成形のための圧延加工を行うと、針状に析出したアルミニウムー炭素相に亀裂が入り、その析出相の長手軸方向に沿って亀裂が伝播して、耳割れやわに口割れを引き起こすのである。このような知見より、本発明者らは、再溶解前におけるアルミニウムー炭素合金のインゴットを冷間加工することにより、アルミニウムー炭素の針状析出相を予め微細化することによって、最終的な成形加工時における割れの発生を防止するものとした。

【0022】この再溶解前におけるアルミニウムー炭素合金は冷間圧延などの冷間加工をすると、アルミニウム母相中で針状に析出したアルミニウムー炭素相が粉碎された状態となる。そして、この冷間加工したアルミニウムー炭素合金を再溶解すると、最終的にターゲット材用の板材等に成形加工する際に、割れの発生が抑制され、加工歩留まりが著しく向上するのである。また、最終的に得られるアルミニウム系合金ターゲット材は、アルミニウム母相中のアルミニウムー炭素相がさらに微細な状態で分散したものとなるのである。

【0023】再溶解前のアルミニウムー炭素合金のインゴットを冷間加工する場合、その加工方法自体に特に制限はないが、その加工率は50%以上であることが好ましい。50%以上の加工率であると、アルミニウム母相中のアルミニウムー炭素相を確実に粉碎し、非常に微細な分散状態となるので、最終的な成形加工で発生する割れを極力低減できる。

【0024】また、上記した3元系のアルミニウム系合金ターゲット材の製造方法においては、再溶解時に、添加元素とともにアルミニウムを加えることで、所定の炭素含有量に調整することが好ましい。本発明の製造目的であるアルミニウム系合金ターゲット材は、薄膜特性としての耐熱性、低抵抗性を満足できる組成でなければならず、そのためには、アルミニウム中の炭素、添加元素の含有量を厳密にコントロールする必要がある。炭素ルツボにアルミニウムを溶解して生成するアルミニウムー

炭素合金は、状態図に従った固溶量でアルミニウム中に炭素を含ませることができるものの、より厳密的な含有量制御はやや困難を伴うものといえる。そこで、予め多めの炭素含有量となるアルミニウム-炭素合金を炭素ルツボに生成するようにし、再溶解時に、添加元素とともにアルミニウムを加えることによって、最終的に製造するアルミニウム系合金ターゲット材の組成を厳密に調整するのである。これにより、薄膜に要求される耐熱性、低抵抗性を満足する組成を有したターゲット材を容易に製造することができる。

【0025】尚、本発明に係る3元系のアルミニウム系合金ターゲット材の製造方法において説明した、再溶解前の冷間加工及びアルミニウムの添加による組成調整は、アルミニウムと炭素とからなる2元系のアルミニウム系合金ターゲット材を製造する際にも有効である。炭素ルツボに生成したアルミニウム-炭素合金の溶湯を冷却凝固して得られたインゴットを、そのままターゲット材用の板材とするための圧延等の最終的な成形処理をすると、材料自体に割れが発生しやすい。そこで、3元系の場合と同様に、再溶解前におけるアルミニウム-炭素合金を冷間圧延などの冷間加工をし、アルミニウム母相中に針状に析出したアルミニウム-炭素相を粉碎して、その冷間加工したアルミニウム-炭素合金を再溶解して製造するのである。そうすると、ターゲット材用の板材に最終的な成形加工をする際に、割れの発生が抑制され、加工歩留まりを著しく向上できる。そして、最終的に得られるアルミニウム系合金ターゲット材は、アルミニウム母相中のアルミニウム-炭素相がさらに微細な状態で分散したものである。

【0026】また、再溶解時にアルミニウムのみを添加して、炭素含有量を調整することも、アルミニウムと炭素との2元系のアルミニウム系合金ターゲット材に有効である。例えば、1900℃を超える加熱温度で炭素ルツボ中のアルミニウムを溶解してアルミニウム-炭素合金を生成した場合、その生成される合金の炭素含有量は、状態図に従い3.0wt%を超えることとなり、薄膜特性を満足できなくなる。そこで、薄膜特性に適した炭素含有量、即ち、0.1~3.0wt%の炭素含有量のアルミニウム-炭素合金を製造するためには、再溶解時にアルミニウムのみ加えて炭素含有量を調整するのである。

【0027】本発明に係る3元系のアルミニウム系合金ターゲット材の製造方法において、添加元素としてマグネシウムを用いる場合には、再溶解時の加熱温度を660~900℃で行うことが好ましい。マグネシウムは低融点金属であるため、再溶解時の加熱温度が900℃を超えると、添加するマグネシウムの蒸発が激しくなり、所定目的の組成にすることが難しくなり、作業性も低下し、危険性も大きくなるからである。また、660℃未満の温度では溶湯の粘性が高くなり、マグネシウムを加

えて攪拌できる程度の流動状態にならないからである。この加熱温度範囲は750~850℃がより好ましく、この温度範囲であればマグネシウムの蒸発も少なく、攪拌作業が確実に行える適度な流動状態を維持でき、鋳型への casting 性も良好となる。これにより、低抵抗性、耐熱性に優れた薄膜を形成可能なアルミニウム系合金ターゲット材を容易に製造することができる。

【0028】本発明に係るアルミニウム系合金ターゲット材の製造方法においては、炭素ルツボ内でのアルミニウムの溶解、及び再溶解ルツボでのアルミニウム-炭素合金の再溶解を、不活性ガス雰囲気中で行うことが好ましい。アルゴンガスなどの不活性ガス雰囲気中で溶解又は再溶解することにより、得られるアルミニウム系合金ターゲット材の酸化を極力防止することができるからである。また、炭素ルツボでの溶解又は再溶解ルツボでの再溶解時には、溶解雰囲気中の圧力制御を行うことが好ましい。いわゆる蒸気圧制御を行うと、製造するアルミニウム系合金ターゲット材の組成を厳密にコントロールできるようになるからである。つまり、溶解雰囲気中の圧力が低いと、含有させる炭素や添加元素が蒸発しやすくなり、目的組成のアルミニウム系合金ターゲット材を製造することが難しくなるからである。

【0029】本発明による製造方法で得られたアルミニウム系合金ターゲット材は、アルミニウム母相中におけるアルミニウム-炭素相の大きさが500μm以下の微細な析出相となる。このアルミニウム-炭素相の析出は、冷却速度が大きくなるほど微細になり、3~5℃/secの場合では大きさ500μm程度の析出をするが、 $1.0 \times 10^4 \sim 2.0 \times 10^5$ ℃/secの場合では、1~3μm程度の極めて微細な析出をするようになる。このように微細に析出したアルミニウム-炭素相を有する本発明の製造方法より得られたアルミニウム系合金ターゲット材は、スパッタリングにおけるターゲット材の放電特性が非常に良好となり、偏析や欠陥も殆どないので、耐熱性や低抵抗性などの薄膜特性を満足した薄膜の形成を安定して行えるものとなる。

【0030】

【発明の実施の形態】以下、本発明の好ましい実施形態を、実施例と比較例とに基づいて説明する。

【0031】実施例1：まず、カーボンルツボ（純度99.9%）に、純度99.99%のアルミニウムを投入して、1790℃で加熱してアルミニウムを溶解した。このカーボンルツボによるアルミニウムの溶解は、アルゴンガス雰囲気中で雰囲気圧力は大気圧として行った。この溶解温度で約5分間保持し、カーボンルツボ内にアルミニウム-炭素合金を生成した後、その溶湯を炭素鋳型に投入して、放置することにより自然冷却して製造した。炭素鋳型に投入して溶湯が凝固した状態になるまでの時間は5分間で、その時の炭素鋳型内温度を測定したところ660℃になっていた。このことにより、冷却速

度は約 $3.8^{\circ}\text{C}/\text{sec}$ であることが確認された。

【0032】この炭素鑄型に鑄造したアルミニウム-炭素合金の鑄塊を取り出して分析したところ、炭素含有量は $0.97\text{wt}\%$ となっていた。この鑄造して得られた炭素濃度 $0.97\text{wt}\%$ のアルミニウム-炭素合金を 2000g と、純度 99.99% のアルミニウム 791g とを、再溶解用のカーボンルツボに投入し、 800°C に加熱して再溶解した。この実施例 1 では再溶解ルツボとしてカーボンルツボを使用しているが、再溶解時の加熱温度が 800°C であるので、アルミニウム-炭素系状態図に従い、再溶解用のカーボンルツボから炭素の溶出は殆ど生じない。

【0033】そして、再溶解用カーボンルツボ内の溶湯に、マグネシウム 56.95g を加え、約 1 分間攪拌を行った。この再溶解についても、アルゴンガス雰囲気中で、雰囲気圧力は大気圧にして行った。攪拌後、溶湯を銅水冷鑄型に鑄込むことにより、所定形状のターゲット材を得た。このターゲット材を分析した結果、炭素含有量 $0.70\text{wt}\%$ 、マグネシウム含有量 $2\text{wt}\%$ であるアルミニウム-炭素-マグネシウム合金となっていることが確認された。

【0034】実施例 2：つぎに、メルトスピン法による急冷凝固の場合について説明する。カーボンルツボ（純度 99.9% ）に、純度 99.99% のアルミニウムを投入して、 1790°C で加熱してアルミニウムを溶解した。このカーボンルツボによるアルミニウムの溶解は、アルゴンガス雰囲気中で雰囲気圧力は大気圧として行った。このカーボンルツボ内に生成されたアルミニウム-炭素合金の溶湯 5g を、メルトスピン装置の石英管に投入した。この石英管は、アルゴン雰囲気（圧力 1.3Pa ）中に配置され、 1800°C にまで加熱した。この後、石英管の先端に設けられた直径 1mm の穴から、冷却された銅ドラム（回転速度： 3000rpm ）の周面に向けて、溶湯を出湯して吹き付けた。

【0035】これにより、厚さ $50\sim 70\mu\text{m}$ のアルミニウム-炭素合金の箔が作製された。この銅ドラムを用いたスピンメルト法による冷却速度を算出したところ、約 $1.7\times 10^4^{\circ}\text{C}/\text{sec}$ であることが確認された。このようにアルミニウム-炭素合金箔をある程度の量作製し、それを一つに纏め、カーボン製の再溶解ルツボにより再溶解し、再溶解した溶湯を銅水冷鑄型に鑄込むことにより、アルミニウム-炭素合金のターゲット材を得た。再溶解時の加熱温度は 800°C としたので、アルミニウム-炭素系状態図に従い、再溶解用のカーボンルツボから炭素の溶出は殆ど生じない。このターゲット材を分析した結果、炭素含有量 $0.70\text{wt}\%$ 、であるアルミニウム-炭素-合金となっていることが確認された。

【0036】比較例：この比較例は、発明者等が提案したスパッタリング法でのターゲット材の製造方法によるものである。このスパッタリング法では、まず、アルミ

ニウム（純度 99.999% ）ターゲットと、炭素（純度 99.9% ）ターゲットと、回転基板とを準備し、3 カソード・マグネトロンスパッタリングタイプのスパッタリング装置に配置した。回転基板は、装置チャンバーのほぼ中央に配置した。アルミニウムターゲットと炭素ターゲットとは、回転基板の周囲に、両ターゲットの回転基板に向かう方向が互いに直交する状態となるように配置した。また、回転基板は筒状体で、この筒状体側面にはアルミニウム箔（純度 99.999% ）を巻き付けたものを用いた。

【0037】スパッタリング条件は、チャンバー内にアルゴンガスを導入し、スパッタリング圧力を 0.87Pa 、投入電力は、アルミニウムターゲットに 12kW ($24.8\text{W}/\text{cm}^2$)、炭素ターゲットに 4kW ($3.4\text{W}/\text{cm}^2$) とし、回転基板の回転速度は 7rpm として、回転基板のアルミニウム箔上に、アルミニウムと炭素とを堆積させた。約 30 時間のスパッタリングを行い、厚さ 0.6mm のバルク体を回転基板のアルミニウム箔上に形成した。この形成されたバルク体の断面結晶構造を観察したところ、約 $0.3\mu\text{m}$ 厚のアルミニウム層と約 $0.01\mu\text{m}$ 厚の炭素層とが積層された状態でバルク体を形成し、そのバルク体における炭素濃度は $2.6\text{wt}\%$ (5.6 原子%) となっていた。

【0038】このバルク体を、別途準備した所定量のアルミニウム（純度 99.999% ）とともに真空溶解することで、アルミニウム-炭素合金組成の炭素濃度が $0.70\text{wt}\%$ となるように調整し、さらに、マグネシウムを加えることでマグネシウム濃度が $2\text{wt}\%$ となるように調整し、その後銅水冷鑄型に鑄造した。その結果、得られたターゲット材は、炭素 $0.67\text{wt}\%$ 、マグネシウム $1.97\text{wt}\%$ であるアルミニウム-炭素-マグネシウム合金となっていることが確認された。

【0039】次ぎに、上記した実施例 1、2 及び比較例で得られたターゲット材の断面組織観察を行った結果について説明する。図 1 には、実施例 1 と比較例とで得られたターゲット材断面を実体顕微鏡で観察した写真を示している。図 1 (A-1) に示すものは、上記実施例 1 で説明した銅水冷型に鑄込んだターゲット材（厚み約 20mm ）の断面で、(A-2) に示すものは、銅水冷鑄型の代わりにカーボン鑄型に鑄込んだターゲット材（厚み約 40mm ）の断面である。また、図 1 (B) は上記比較例のターゲット材（厚み約 40mm ）の断面を示している。そして、図 2 には、図 1 で示したそれぞれのターゲット材断面を、実体顕微鏡にて観察した写真を示している。

【0040】図 1 (B) で示す比較例のターゲット材では、インゴット内に多数の黒点状のものが析出している状態が観察された。この黒点状の析出は、X 線回折により Al_4C_3 相（アルミニウム-炭素相）であることが判明し、 1mm 径程度の比較的大きな析出もあることが

確認された。一方、実施例 1 によるターゲットの場合、銅水冷鑄型、カーボン水冷鑄型のどちらにおいても、比較例のターゲット材で見られたような大きな Al_4C_3 相の析出は確認されなかった。

【0041】図 3 には、実施例 1 のターゲット材について、カーボンルツボに鑄込んだ際のアルミニウム-炭素合金の断面と、再溶解後銅水冷鑄型に鑄込んで最終的に得られたターゲット材の断面とを金属顕微鏡で観察した写真を示している。カーボンルツボに、純度 99.99% のアルミニウムを投入して、1790℃ で加熱してアルミニウムを溶解し、カーボンルツボ内にアルミニウム-炭素合金を生成した後、その溶湯を炭素鑄型に投入して、放置することにより自然冷却して鑄造したアルミニウム-炭素合金は、図 3 (1a) 及び (1b) のように (1a): 倍率 50、(1b): 倍率 200)、アルミニウム母相中に、10~30 μm 前後の微細な Al_4C_3 相を析出している状態が確認された。また、幅 10 μm 、長さ 500 μm 程度の針状の Al_4C_3 相が析出していることも観察された。

【0042】また、この鑄造したアルミニウム-炭素合金を再溶解した後に、得られたターゲット材においても、図 3 (2a) 及び (2b) に示すように ((2a): 倍率 50、(2b): 倍率 200)、 Al_4C_3 相の析出は再溶解前のものと、ほぼ同様な状態であることが判明した。さらに、再溶解後に得られたターゲット材では、針状の Al_4C_3 相は幅方向で僅かに成長したような印象も見受けられたが、基本的にはターゲット材中に均一に微細に分散しており、部分的に偏析した状態は確認されなかった。

【0043】図 4 には、実施例 2 のアルミニウム-炭素合金箔の観察写真を示している。図 4 (1) は、メルトスピン後のアルミニウム-炭素合金箔を SEM 観察したもので、図 4 (2) は、その吸収電子線像を示したものである。吸収電子線像において、やや黒ずんだ部分が各所に見られたが、この黒い部分を X 線分析した結果、炭素であることが確認された。そのため、この SEM 像と吸収電子線像とにより、冷却速度が約 1.7×10^4 °C/s であると、アルミニウム-炭素相は、大きさ 1~3 μm 程度の非常に微細な析出相となっていることが判明した。また、再溶解後のターゲット材においても、アルミニウム-炭素相の粗大化は殆ど生じていなく、非常に微細で均一な状態でアルミニウム母相中に分散していることが判明した。

【0044】更に、実施例 1 及び比較例により得られたターゲット材を用いてアルミニウム合金薄膜を形成して比較を行った結果について示す。この薄膜での比較は、実施例及び比較例で説明したターゲット材を用いて、ガラス基板上にアルミニウム合金薄膜を形成し、耐熱性と低抵抗性との測定をすることにより行った。アルミニウム薄膜の成膜条件は、DC マグネトロン・スパッタ装置

を用い、スパッタ圧力 0.33 Pa (2.5 mTorr)、投入電力 3 W/cm² で、ガラス基板上に膜厚 0.3 μm 程度の薄膜を形成した。耐熱性は、薄膜付ガラス基板を真空中で、温度 300℃ で所定時間熱処理した際に、薄膜表面に発生するコブ状の突起（ヒロック）が発生するか否かで判断した。その結果、比較例のターゲット材による薄膜ではヒロック発生がなく、実施例のターゲット材でも同様に発生しないことが確認された。また、両ターゲット材による薄膜の電気比抵抗を測定したところ、どちらも 6 $\mu \Omega cm$ 程度の比抵抗であることが確認された。

【0045】そして更に、上述した実施例 1 と比較例とにおける生産効率性を検討した結果について説明する。同じ設備投資において両製造方法でターゲット材を製造する場合を検討したところ、本実施例の製造方法の方が、比較例に比べ、生産性を約 10 倍近く向上できることが判明した。また、同一組成のターゲット材を生産する際のコストを算定したところ、本実施例の場合では、スパッタに要する使用電気量やスパッタ装置の冷却費用などの生産量に比例してコスト増加に繋がる要因が少ないので、比較例の場合と異なり、製造コストを抑制して、ターゲット材を製造できることが判った。

【0046】最後に、実施例 1 において再溶解前に冷間圧延をした場合の割れの発生について調査した結果について説明する。実施例 1 の製造方法では、カーボンルツボ内に生成したアルミニウム-炭素合金を炭素鑄型に鑄造して冷却凝固し、そのアルミニウム-炭素合金をそのまま再溶解した場合を示している。この実施例 1 において、厚さ 30 mm のインゴット（アルミニウム-炭素-マグネシウム合金）を圧延加工して、厚み 8 mm の板状ターゲット材を最終的に作製した場合、その加工歩留まりは約 30~50% 程度であった。この歩留まりの低い理由は、作製した板状ターゲット材に、耳割れやわに口割れと呼ばれる欠陥が生じたためである。

【0047】この耳割れの発生した部分を SEM 観察（200 倍）したところ、図 5 に示すように、耳割れの基端側を辿っていくと、アルミニウム-炭素相が存在していることが確認された。そこで、実施例 1 で示す再溶解前のアルミニウム-炭素合金に冷間圧延処理（圧下率 50%）を行った。そして、この冷間圧延したアルミニウム-炭素合金を再溶解ルツボに投入し、マグネシウムを加えて実施例 1 と同じ組成のアルミニウム-炭素-マグネシウム合金を得た。この冷間圧延を行った場合のインゴット（厚さ 30 mm、アルミニウム-炭素-マグネシウム合金）を圧延加工して、厚さ 8 mm の板状ターゲット材を最終的に作製したところ、その加工歩留まりは約 80% まで向上することが判明した。

【0048】図 6 及び図 7 は、再溶解前のアルミニウム-炭素合金について、冷間圧延の有無によって生じる組織を SEM 観察（1000 倍）したものである。図 6

は、再溶解前のインゴット（アルミニウム－炭素合金）の組織であり冷間圧延をしていない状態で、図 7 は冷間圧延を行った後の状態を観察したものである。この図 7 を見ると判るように、再溶解前のアルミニウム－炭素合金を冷間圧延すると、アルミニウム母相中に、針状に析出したアルミニウム－炭素相（図 6 の黒っぽい部分）が粉々に粉碎されている状態となっていることが確認された。つまり、再溶解前のアルミニウム－炭素合金を冷間圧延すると、割れの原因である針状のアルミニウム－炭素相は粉碎されてしまうので、最終的な加工歩留まりが

【0049】

【発明の効果】以上説明したように、本発明の製造方法によれば、アルミニウム母相中のアルミニウム－炭素相が微細に且つ均一な状態で析出し、偏析や欠陥も少ないアルミニウム系合金ターゲット材を、製造コストを増加させることなく、容易に製造することが可能となる。 *

* 【図面の簡単な説明】

【図 1】 実施例 1 及び比較例のターゲット材断面観察写真。

【図 2】 実施例 1 及び比較例のターゲット材断面観察拡大写真。

【図 3】 実施例 1 における再溶解前のアルミニウム－炭素合金と製造したターゲット材との断面観察写真。

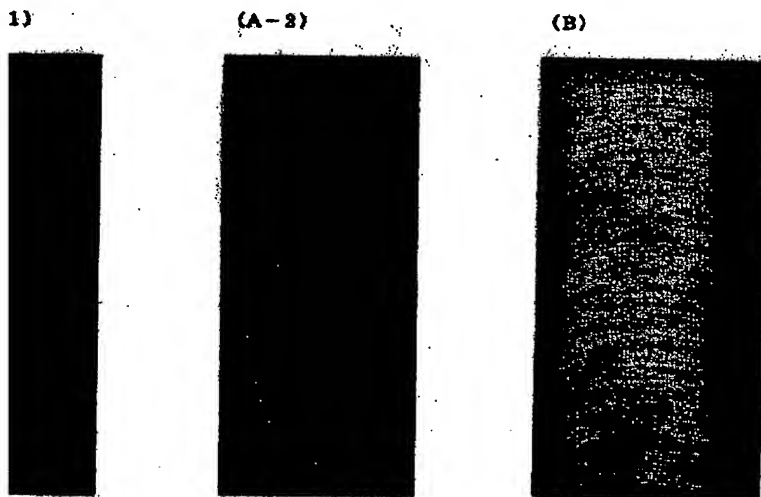
【図 4】 実施例 2 におけるアルミニウム－炭素合金箔と再溶解して製造したターゲット材との断面観察写真。

【図 5】 実施例 1 における最終的に得られた板状ターゲット材に発生した耳割れ欠陥を観察した SEM 写真。

【図 6】 実施例 1 における再溶解前のアルミニウム－炭素合金について冷間圧延をしていない組織を観察した SEM 写真。

【図 7】 実施例 1 における再溶解前のアルミニウム－炭素合金について冷間圧延を行った組織を観察した SEM 写真。

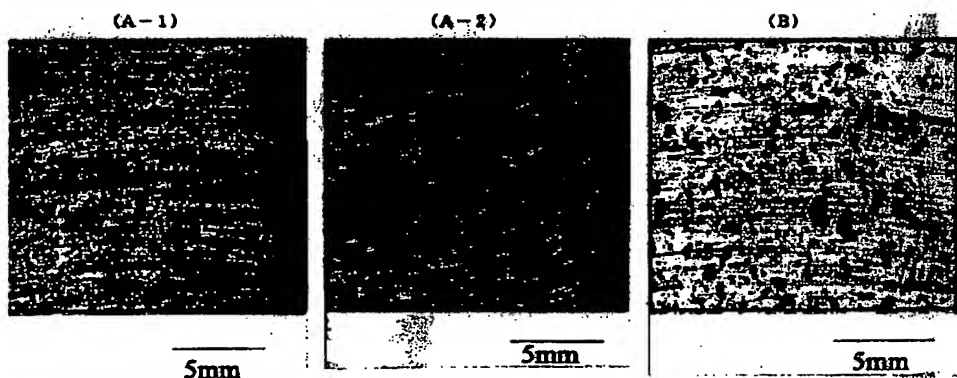
【図 1】



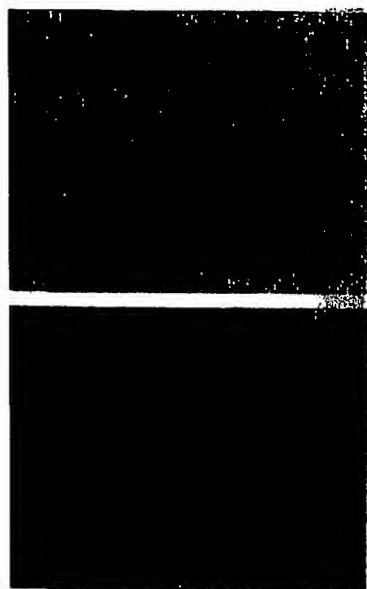
【図 5】



【図 2】



【図 3】



【図 4】



【図 6】



【図 7】



フロントページの続き

(72)発明者 松前 和男
埼玉県上尾市原市1333-2 三井金属鉱業
株式会社総合研究所内

(72)発明者 加藤 和照
埼玉県上尾市原市1333-2 三井金属鉱業
株式会社総合研究所内
Fターム(参考) 4K029 BA23 BD02 CA05 DC04 DC08

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☒ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.